



2879 2800

0430  
500.41280X00  
RECEIVED  
APR 22 2002  
TECHNOLOGY CENTER 2000

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant(s): ISHIHARA, et al  
Serial No.: 10 / 082,183  
Filed: FEBRUARY 26, 2002  
Title: ORGANIC LIGHT EMITTING ELEMENT AND DISPLAY DEVICE  
USING ORGANIC LIGHT EMITTING ELEMENT

LETTER CLAIMING RIGHT OF PRIORITY

Assistant Commissioner for  
Patents  
Washington, D.C. 20231

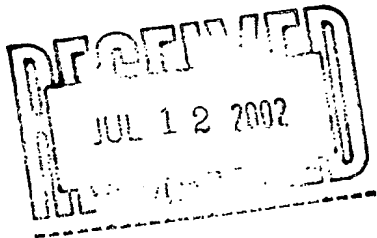
MARCH 18, 2002

Sir:

Under the provisions of 35 USC 119 and 37 CFR 1.55, the applicant(s) hereby claim(s)  
the right of priority based on:

Japanese Patent Application No. 2001-259572  
Filed: AUGUST 29, 2001

A certified copy of said Japanese Patent Application is attached.



Respectfully submitted,

ANTONELLI, TERRY, STOUT & KRAUS, LLP

Carl I. Brundidge  
Registration No. 29,621

CIB/rp  
Attachment



W0117-01 EO  
日本特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2001年 8月29日

出願番号

Application Number:

特願2001-259572

[ST.10/C]:

[JP2001-259572]

出願人

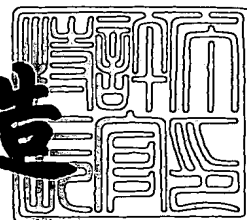
Applicant(s):

株式会社日立製作所

2002年 2月15日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2002-3007601

【書類名】 特許願

【整理番号】 NT01P0262

【提出日】 平成13年 8月29日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 G09F 13/20

【発明者】

    【住所又は居所】 茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株式会社日立製作所 日立研究所内

    【氏名】 石原 慎吾

【発明者】

    【住所又は居所】 茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株式会社日立製作所 日立研究所内

    【氏名】 荒谷 介和

【発明者】

    【住所又は居所】 茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株式会社日立製作所 日立研究所内

    【氏名】 足立 昌哉

【特許出願人】

    【識別番号】 000005108

    【氏名又は名称】 株式会社日立製作所

【代理人】

    【識別番号】 100068504

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 小川 勝男

    【電話番号】 03-3661-0071

【選任した代理人】

    【識別番号】 100086656

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 田中 恭助

【電話番号】 03-3661-0071

【選任した代理人】

【識別番号】 100094352

【弁理士】

【氏名又は名称】 佐々木 孝

【電話番号】 03-3661-0071

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 081423

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 有機発光素子およびそれを用いた有機発光表示装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 基板上に少なくとも第 1 電極、有機層、第 2 電極、保護層を形成した有機発光素子において、

前記有機層内の発光領域から発光光を射出する空気層までの距離  $d$  が式〔1〕

〔数 1〕

$$d \leq \lambda / 4 \quad (\lambda : \text{発光光中心波長}) \quad \dots [1]$$

を満足することを特徴とする有機発光素子。

【請求項 2】 基板上に少なくとも第 1 電極、有機層、第 2 透明電極を形成した有機 EL 基板、および、対向基板を有する有機発光素子において、

前記有機 EL 基板と対向基板との間に光取出し層を有することを特徴とする有機発光素子。

【請求項 3】 基板上に少なくとも第 1 電極、有機層、第 2 透明電極を形成した有機 EL 基板、および、対向基板を有する有機発光素子において、

前記有機 EL 基板と対向基板との間に光取出し層を有し、

前記有機層内の発光領域から前記第 2 透明電極までの間に形成された層の全膜厚  $d$  が式〔1〕

〔数 2〕

$$d \leq \lambda / 4 \quad (\lambda : \text{発光光中心波長}) \quad \dots [1]$$

を満足することを特徴とする有機発光素子。

【請求項 4】 基板上に少なくとも第 1 電極、有機層、第 2 透明電極を形成した有機 EL 基板、および、対向基板を有する有機発光素子において、

前記有機 EL 基板と対向基板との間に光取出し層、および、前記第 2 透明電極の補助電極を有することを特徴とする有機発光素子。

【請求項 5】 基板上に少なくとも第 1 電極、有機層、第 2 透明電極が形成された有機 EL 基板、および対向基板を有する有機発光素子において、

前記有機 EL 基板と対向基板の間に光取出し層、および、前記第 2 透明電極の補助電極を有し、前記有機層内の発光領域から前記第 2 透明電極までに形成され

た層の全膜厚  $d$  が次式〔1〕

〔数 3〕

$$d \leq \lambda / 4 \quad (\lambda : \text{発光光中心波長}) \quad \dots [1]$$

を満足することを特徴とする有機発光素子。

【請求項 6】 前記有機 EL 基板と前記対向基板との間に、前記光取出し層の厚さを制御するリブを設けた請求項 2 ～ 5 のいずれかに記載の有機発光素子。

【請求項 7】 前記光取出し層の膜厚が  $50 \mu\text{m}$  以上である請求項 6 に記載の有機発光素子。

【請求項 8】 前記リブを前記対向基板上に形成した請求項 6 に記載の有機発光素子。

【請求項 9】 前記リブがガラス、または、光硬化性樹脂で形成されている請求項 8 に記載の有機発光素子。

【請求項 10】 前記有機 EL 基板と前記対向基板の封止部分にリブが形成されている請求項 8 に記載の有機発光素子。

【請求項 11】 前記有機 EL 基板と前記対向基板の間にカラーフィルタが形成されている請求項 2 ～ 5 のいずれかに記載の有機発光素子。

【請求項 12】 前記カラーフィルタが前記対向基板上に形成されている請求項 11 に記載の有機発光素子。

【請求項 13】 前記対向基板上に吸湿層を設けた請求項 2 ～ 5 のいずれかに記載の有機発光素子。

【請求項 14】 前記有機 EL 基板と前記対向基板を封止する周辺に吸湿層を設けた請求項 2 ～ 5 のいずれかに記載の有機発光素子。

【請求項 15】 補助電極が画素間に形成されている請求項 4 ～ 5 のいずれかに記載の有機発光素子。

【請求項 16】 補助電極が前記対向基板上に形成された画素間に形成されている請求項 4 ～ 5 のいずれかに記載の有機発光素子。

【請求項 17】 補助電極が前記第 2 透明電極の上に形成されている請求項 4 ～ 5 のいずれかに記載の有機発光素子。

【請求項 18】 前記第 2 透明電極と前記補助電極をオーミック接触させる

ための接着層を設けた請求項 1 7 に記載の有機発光素子。

【請求項 1 9】 前記第 2 電極が高光透過率の極薄膜金属で形成されている請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の有機発光素子。

【請求項 2 0】 請求項 1 ～ 1 9 のいずれかに記載の有機発光素子を用いたことを特徴とする有機発光表示装置。

【請求項 2 1】 前記有機発光素子が 1 画素内に赤，緑，青の各色に対応する有機発光素子である請求項 2 0 に記載の有機発光表示装置。

【請求項 2 2】 前記有機発光素子の第 2 電極が高光透過率の極薄膜金属で形成されている請求項 2 0 または 2 1 に記載の有機発光表示装置。

【請求項 2 3】 請求項 2 0 ～ 2 2 のいずれかに記載の有機発光表示装置を表示部に適用したことを特徴とする携帯電話機。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は、有機発光素子とそれを用いた有機発光表示装置に関する。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

本格的なマルチメディア時代の到来に伴い、マン・マシンインターフェイスとして用いられる平面型の表示装置がクローズアップされている。

【 0 0 0 3 】

平面型表示装置としては、従来、液晶ディスプレイが用いられている。しかしながら液晶表示装置には、狭視野角，低速応答性と云った問題点が挙げられる。

【 0 0 0 4 】

近年、有機エレクトロルミネセンス (E l e c t r o L u m i n e s c e n c e : E L) 表示装置が次世代平面型表示装置として注目されている。この有機発光表示装置は、自発光，広視野角，高速応答特性と云った優れた特性を有する。

【 0 0 0 5 】

従来の有機 E L 素子の構造は以下の通りである。ガラス基板上に I T O 等の第

1 透明電極、有機正孔輸送層、有機発光層、有機電子輸送層等の発光層、低仕事関数の第 2 電極が形成されている。

【0 0 0 6】

上記の両電極間に数 V 程度の電圧を印加し、各電極にそれぞれ正孔、電子が注入され、輸送層を経由して発光層で結合し、エキシトンが生成される。エキシトンが基底状態に戻る際に発光する。発光光は第 1 透明電極を透過して基板側から取出す。

【0 0 0 7】

有機層、第 1 透明電極、ガラス基板の屈折率は、それぞれ 1.6, 2.0, 1.5 程度である。そのため、第 1 透明電極とガラス基板の界面およびガラス基板と出射する空気層の界面において臨界角が存在する。臨界角とは、基板の法線方向と入射光の成す角が、ある角度以上になると透過せず、全反射が起ってしまう角度を云う。このため、従来の構造では取出し効率が低く、20%程度しか取出せなかった。

【0 0 0 8】

有機 EL 素子を用いた表示装置には、単純マトリクス表示装置とアクティブマトリクス表示装置がある。

【0 0 0 9】

単純マトリクス表示装置は、複数の陽極ラインと陰極ラインが交差した画素位置に正孔輸送層、発光層、電子輸送層等の有機層が形成されており、各画素は 1 フレーム期間中、選択時間のみ点灯する。また、単純マトリクス表示装置は構造が単純であると云う利点を有する。

【0 0 1 0】

しかし、画素数が多くなると選択時間が短くなるので、駆動電圧を高くし、瞬間輝度を高くする必要がある。そのため、有機 EL 素子の寿命を短くすると云う問題がある。また、有機 EL 素子は電流駆動であるため、大画面では配線抵抗等による電圧降下が生じ、画素間の均一面質化が困難となる。以上のことより、単純マトリクス表示装置では高精細、大画面化に限界がある。

【0 0 1 1】



アクティブマトリクス表示装置では、各画素を構成する有機EL素子に、2～4個の薄膜トランジスタのスイッチング素子から構成される駆動部が接続されており、1フレーム期間中の全点灯が可能となる。そのため、輝度を高くする必要がなく、有機EL素子の寿命を長くすることが可能となる。

## 【0012】

一方、前述したように、従来の有機EL素子では、発光光を基板側から取出すため、駆動部により開口率が制限される。これを解決するため、上部電極を透明化し、発光光の取出しを上部電極側から行う試みがある。

## 【0013】

USP第5,703,436号公報では、上部電極を2層構成にし、第1層にMg, Ag等の注入層、第2層にITO (Indium Tin Oxide) 等の透明電極を用い、上部電極から光を取出す有機EL素子が開示されている。

## 【0014】

また、特開平6-163158号公報では、透明であるアルカリ土類金属酸化物で構成された電子注入層と、透明陰極材料からなる有機EL素子が開示されている。

## 【0015】

## 【発明が解決しようとする課題】

一般に、全反射を生じさせないためには、最終媒体の屈折率に近い値を有する媒体を有機EL素子内部に形成すればよい。この場合、最終媒体は空気層であり、屈折率は1である。しかし、屈折率1の層を素子内部に形成した場合、その界面で再び全反射が発生してしまい、取出し効率の低下を招いてしまう。

## 【0016】

また、第2電極側から光を取出す有機EL素子では、透明電極を有機層の上部に形成する必要がある。透明電極は、金属電極に比べ形成時に有機層にダメージを与えるため、この構成の有機EL素子は特性が低下する。そのため、高効率化するための構成を検討する必要がある。

## 【0017】

本発明の第1の目的は、有機発光素子あるいは有機発光表示装置において、内

部で発光した光を、全反射による取出し効率の低下を起こさずに、屈折率 1 の空気層に出射するものを提供することにある。

## 【 0 0 1 8 】

本発明の第 2 の目的は、対向基板を有する有機発光素子あるいは有機発光表示装置において、素子内部で発光した光を、全反射による取出し効率の低下を起こさず、屈折率 1 の空気層に出射するものを提供することにある。

## 【 0 0 1 9 】

## 【課題を解決するための手段】

本発明は、基板上に少なくとも第 1 電極、有機層、第 2 電極、保護層を形成した有機発光素子において、前記有機層内の発光領域から発光光を射出する空気層までの距離  $d$  が式〔1〕を満たす有機発光素子にある。

〔数 4〕

$$d \leq \lambda / 4 \quad (\lambda : \text{発光光中心波長}) \quad \dots [1]$$

次に、本発明は、前記有機 EL 基板と前記対向基板の間に光取出し層を有する有機発光素子にある。

## 【 0 0 2 0 】

ここで云う光取り出し層とは、屈折率 1 に近い材料で形成されることを特徴とする。具体的には不活性ガスで、 $N_2$ 、 $He$ 、 $Ne$ 、 $Ar$  等が挙げられるが、これらに限定されない。

## 【 0 0 2 1 】

ここで云う対向基板とは、有機 EL 基板に、大気内  $H_2O$ 、 $O_2$  が第 2 電極、あるいはその下の有機層に入り込むことを防ぐことにある。また、有機 EL 基板からの発光光を屈折率 1 の空気層に取り出すことを特徴とする。そのため、対向基板は可視光の透過率が高い材料が望ましい。具体的にはガラス、アルミナ焼結体等の無機材料、ポリイミド膜、ポリエステル膜、ポリエチレン膜、ポリフェニレンスルフィド膜、ポリパラキシレン膜等の各種絶縁性プラスチック等が挙げられるが、これらに限定されない。

## 【 0 0 2 2 】

また、本発明は、基板上に少なくとも第 1 電極、有機層、第 2 透明電極が形成

される有機EL基板、並びに、対向基板から構成される有機発光素子において、前記有機EL基板と前記対向基板の間に光取出し層を有し、前記有機層内発光領域から前記第2透明電極まで形成された層の全膜厚dが前記式〔1〕を満足する有機発光素子にある。

## 【0023】

また、前記有機EL基板と前記対向基板の間に光取出し層、および、前記第2透明電極用補助電極を有する有機発光素子にある。

## 【0024】

また、前記有機EL基板と前記対向基板の間に光取出し層、および、前記第2透明電極用補助電極を有し、前記有機層内発光領域から前記第2透明電極まで形成された層の全膜厚dが前記式〔1〕を満足する有機発光素子にある。

## 【0025】

また、本発明では、前記有機EL基板と前記対向基板の間に前記光取出し層の厚さを制御するリブを有することが望ましい。また、前記光取出し層の膜厚が50 $\mu$ m以上であることが望ましい。

## 【0026】

また、本発明では、前記リブを前記対向基板上に形成することが望ましく、前記リブがガラスで形成されることが望ましい。また、該リブは光硬化性樹脂で形成されていてもよい。

## 【0027】

また、本発明では、前記有機EL基板と前記対向基板の封止部分にリブが形成されることが望ましい。

## 【0028】

また、前記有機EL基板と前記対向基板の間にカラーフィルタ層が形成されることが望ましく、前記カラーフィルタ層が前記対向基板上に形成されることが望ましい。また、前記対向基板上に吸湿層を有することが望ましい。

## 【0029】

また、本発明では、前記有機EL基板と前記対向基板を封止する周辺に吸湿層を形成することが望ましい。

【 0 0 3 0 】

また、前記補助電極が前記対向基板上に形成される画素間に形成されることが望ましい。

【 0 0 3 1 】

また、前記第 2 透明電極と前記補助電極をオーミック接触させるため接着層を設けることが望ましい。

【 0 0 3 2 】

また、前記補助電極が画素間に形成されることが望ましく、前記補助電極が前記第 2 透明電極の上に形成されることが望ましい。

【 0 0 3 3 】

さらにまた、本発明は前記の有機発光素子を用いた有機発光表示装置にある。

【 0 0 3 4 】

本発明の有機発光表示装置では、1 画素内に赤、緑、青の各色に対応する有機発光素子を配置し、高効率あるいは長寿命有機発光素子の一部の上に、前記補助電極が配置されることが望ましい。上記第 2 電極が高い透過率を有する極薄膜金属を用いることが望ましい。

【 0 0 3 5 】

ここで云う有機発光素子とは、基板上に第 1 電極、第 1 注入層、第 1 輸送層、発光層、第 2 輸送層、第 2 注入層、第 2 透明電極、保護層あるいは対向基板が形成された構造をとる。

【 0 0 3 6 】

上記有機発光素子としては、大きく分けて以下の 2 通りの構成がある。

【 0 0 3 7 】

まず、第 1 電極が陽極、第 2 透明電極が陰極の構成である。この場合、第 1 注入層、第 1 輸送層は、それぞれ正孔注入層、正孔輸送層となる。また、第 2 輸送層、第 2 注入層は、それぞれ電子輸送層、電子注入層となる。

【 0 0 3 8 】

次の構成は、第 1 電極が陰極、第 2 透明電極が陽極の構成である。この場合、第 1 注入層、第 1 輸送層は、それぞれ電子注入層、電子輸送層となる。また、第

2 輸送層、第 2 注入層は、それぞれ正孔輸送層、正孔注入層となる。

【 0 0 3 9 】

上記構成において、第 1 注入層、あるいは、第 2 注入層を持たない構成も考えられる。また、第 1 輸送層、あるいは、第 2 輸送層が発光層を兼ねる構成もある。

【 0 0 4 0 】

ここで云う陽極とは、正孔の注入効率を高める仕事関数の大きな導電膜が望ましい。具体的には金、白金が挙げられるが、これらの材料に限定されない。

【 0 0 4 1 】

また、陽極として、 $\text{In}_2\text{O}_3\text{-SnO}_2$ 系透明導電膜、 $\text{In}_2\text{O}_3\text{-ZnO}$ 系透明導電膜が挙げられる。特に、 $\text{In}_2\text{O}_3\text{-SnO}_2$ 系透明導電膜は液晶表示装置の画素電極等に用いられている。透明電極材料の製法はスパッタ法、EB 蒸着法等が挙げられる。

【 0 0 4 2 】

$\text{In}_2\text{O}_3\text{-SnO}_2$ 系透明導電膜、 $\text{In}_2\text{O}_3\text{-ZnO}$ 系透明導電膜の仕事関数は、いずれも 4.6 eV であるが、UV 照射、酸素プラズマ処理等により 5.2 eV まで増大させることが可能である。

【 0 0 4 3 】

$\text{In}_2\text{O}_3\text{-SnO}_2$ 系透明導電膜では、スパッタ法において基板温度を 200℃ 程度まで高めた条件で作製すると多結晶状態になる。多結晶状態では、結晶粒内と結晶粒界面においてエッチング速度が異なるため、アモルファス状態が望ましい。

【 0 0 4 4 】

また、陽極は、前記正孔注入層を設けることにより、仕事関数の大きな材料を用いる必要がなく通常の導電膜でよくなる。具体的にはアルミニウム、インジウム、モリブテン、ニッケル等の金属やこれら金属の合金、ポリシリコン、アモルファスシリコン、錫酸化物、酸化インジウム、インジウム・錫酸化物 (ITO) 等の無機材料が望ましい。

【 0 0 4 5 】

また、形成プロセスが簡便な塗布法を用いたポリアニリン、ポリチオフェン等の有機材料や導電性インクが望ましい。これらの材料に限られるものではなく、また、これらの材料を2種以上併用しても差し支えない。

## 【0046】

前記の正孔注入層は、陽極と正孔輸送層の注入障壁を下げるため、適当なイオン化ポテンシャルを有する材料が望ましい。また、下地層の表面凹凸を埋める役割を果たすことが望ましい。具体的には、銅フタロシアニン、スターバーストアミン化合物、ポリアニリン、ポリチオフェン、酸化バナジウム、酸化モリブテン、酸化ルテニウム、酸化アルミニウム等が挙げられるが、これらに限定されない。

## 【0047】

また、正孔注入層とは、正孔を輸送し発光層へ注入する役割を有する。そのため正孔移動度が高いことが望ましい。また、化学的に安定であることが望ましく、イオン化ポテンシャルが小さいことが望ましい。また、電子親和力が小さいことが望ましい。また、ガラス転移温度が高いことが望ましい。

## 【0048】

具体的には、N,N-ビス(3-メチルフェニル)-N,N-ジフェニル-[1,1-ビフェニル]-4,4-ジアミン(TPD)、4,4-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル( $\alpha$ -NPD)、4,4,4-トリ(N-カルバゾリル)トリフェニルアミン(TCTA)、1,3,5-トリス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)フェニルアミノ]ベンゼン(p-DPA-TDAB)が望ましい。また、これらの材料に限られるものではなく、これらの材料を2種以上併用しても差し支えない。

## 【0049】

前記発光層とは、注入された正孔、電子が再結合し、材料固有の波長で発光する層を指す。発光層を形成するホスト材料自体が発光する場合と、ホストに微量添加したドーパント材料が発光する場合とがある。

## 【0050】

具体的なホスト材料としては、ジスチリルアリーレン誘導体(DPVB<sub>i</sub>)、

骨格にベンゼン環を有するシロール誘導体 (2 P S P) , トリフェニルアミン構造を両端に有するオキサジアゾール誘導体 (E M 2) , フェナンスレン基を有するペリノン誘導体 (P 1) , トリフェニルアミン構造を両端に有するオリゴチオフェン誘導体 (B M A - 3 T) , ペリレン誘導体 (t B u - P T C) , トリス (8 - キノリノール) アルミニウム, ポリパラフェニレンビニレン誘導体, ポリチオフェン誘導体, ポリパラフェニレン誘導体, ポリシラン誘導体, ポリアセチレン誘導体が望ましく、これらの材料に限らず、これらを2種以上併用しても差し支えない。

## 【 0 0 5 1 】

次に、具体的なドーパント材料としては、キナクリドン、クマリン6、ナイルレッド、ルブレン、D C M、ジカルバゾール誘導体が望ましい。これらの材料に限られものではなく、これらの材料を2種以上併用しても差し支えない。

## 【 0 0 5 2 】

前記の電子輸送層とは、電子を輸送し、これを発光層へ注入する役割を有する。そのため、電子移動度が高いことが望ましい。具体的には、トリス (8 - キノリノール) アルミニウム, オキサジアゾール誘導体, シロール誘導体, 亜鉛ベンゾチアゾール錯体が望ましく、これらに限られない。また、これらの材料を2種以上併用しても差し支えない。

## 【 0 0 5 3 】

前記電子注入層とは、陰極から電子輸送層への電子注入効率を向上させるために用いる。具体的には、弗化リチウム, 弗化マグネシウム, 弗化カルシウム, 弗化ストロンチウム, 弗化バリウム, 酸化マグネシウム, 酸化アルミニウムが望ましい。また、これらに限られるものではなく、これらを2種以上併用しても差し支えない。

## 【 0 0 5 4 】

ここで云う陰極は、電子の注入効率を高める仕事関数の小さな導電膜が望ましい。具体的には、マグネシウム・銀合金, アルミニウム・リチウム合金, アルミニウム・カルシウム合金, アルミニウム・マグネシウム合金, 金属カルシウムが挙げられるが、これらに限定されない。

## 【0055】

また、前記の電子輸送層を設ければ、陰極の条件として低仕事関数の材料を用いる必要がなくなり、一般的な金属材料を用いることが可能となる。具体的には、アルミニウム、インジウム、モリブテン、ニッケル等の金属、これら金属の合金や、ポリシリコン、アモルファスシリコンが望ましい。

## 【0056】

また、本発明において、陰極を第2透明電極として用いる場合、陰極下部に電子注入層を設けることが望ましい。電子注入層を設けることにより、低仕事関数の透明導電膜を陰極に用いることが可能となる。具体的には、 $\text{In}_2\text{O}_3-\text{SnO}_2$ 系透明導電膜、 $\text{In}_2\text{O}_3-\text{ZnO}$ 系透明導電膜が挙げられる。特に、 $\text{In}_2\text{O}_3-\text{SnO}_2$ 系透明導電膜は液晶表示装置の画素電極等に用いられている。透明電極材料の製法は、スパッタ法、EB蒸着法等が挙げられる。

## 【0057】

本発明における保護層とは、第2電極上に形成され、大気内 $\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{O}_2$ が第2電極、あるいは、その下の有機層に入り込むのを防ぐことを目的とする。具体的には $\text{SiO}_2$ 、 $\text{SiNx}$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 等の無機材料や、ポリクロロピレン、ポリエチレンテレフタレート、ポリオキシメチレン、ポリビニルクロライド、ポリフッ化ビニリデン、シアノエチルプルラン、ポリメチルメタクリレート、ポリスルホン、ポリカーボネート、ポリイミド等の有機材料が挙げられるが、これらに限定されない。

## 【0058】

また、前記の発光領域とは、前記発光層内で発光した領域を表す。発光層内部に注入された正孔と電子は再結合し、励起子となって発光層内部を拡散する。拡散距離は発光層のホスト材料、ドーパント材料の有無によって変わる。そのため、有機層内の発光領域から発光光を射出する層までの距離 $d$ は、第1輸送層と発光層の界面から前記空気層までの距離と定義される。

## 【0059】

今回、上記 $d$ が発光光の中心波長の $1/4$ 以下であると、発光光は古典的光学の影響を受けず、そのため、全反射によるロスが存在しなくなり、取り出し効率



が向上する。

【 0 0 6 0 】

本発明の有機発光表示装置を携帯電話機の表示部に適用することで、表示部の発光光量を、従来のものよりも増大することが可能であり、また、抵抗値が低下するために消費電力を低減することができる。

【 0 0 6 1 】

【発明の実施の形態】

〔実施例 1〕

以下、本発明の有機発光素子の実施例について説明する。図1は本実施例の有機発光素子の模式断面図とその画素の平面図である。

【 0 0 6 2 】

ガラス基板101上にスパッタリング法を用いて、厚さ150nmのITO膜を形成する。次に、ホトリソグラフィ法を用いて第1透明電極102を形成する。電極サイズは $2 \times 2 \text{ mm}^2$ である。

【 0 0 6 3 】

第1透明電極102を形成したガラス基板101をアセトン、純水の順に、それぞれ超音波洗浄を3分間行った。洗浄後、窒素ガスを用いて乾燥させた後、80℃のオーブンで5分間乾燥させた。

【 0 0 6 4 】

次に、 $\text{O}_2$ プラズマクリーニングを行った。プラズマクリーニング室の真空度は3Pa、 $\text{O}_2$ の流入量は22ml/分、RFパワーは20W、クリーニング時間は3分である。 $\text{O}_2$ プラズマクリーニング後、基板を大気に曝すことなく、真空蒸着チャンバーにセットした。

【 0 0 6 5 】

次に、第1透明電極102上に、真空蒸着法により膜厚20nmの銅フタロシアニン膜（以下、CuPc膜と略記）を形成した。Mo製昇華ボートに原料を約20mg入れ、蒸着速度を $0.15 \pm 0.05 \text{ nm/sec}$ に制御して蒸着した。このCuPc膜は有機正孔注入層103として機能する。その上に、真空蒸着法により膜厚50nmの4,4'-ビス〔N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ

〕ビフェニル膜（以下、 $\alpha$ -NPD膜と略記）を形成した。

【0066】

Mo製昇華ボートに原料を約60mg入れ、蒸着速度を $0.15 \pm 0.05 \text{ nm/sec}$ に制御して蒸着した。この $\alpha$ -NPD膜は有機正孔輸送層104として機能する。その上に、2元同時真空蒸着法により、膜厚20nmのトリス(8-キノリノール)アルミニウム（以下、Alqと略記）とキナクリドンの共蒸着膜（以下、Qcと略記）を形成した。

【0067】

2個のMo製昇華ボートにAlq、Qcの原料を、それぞれ約40mg、約10mg入れ、蒸着速度を、それぞれ $0.40 \pm 0.05 \text{ nm/sec}$ 、 $0.01 \pm 0.005 \text{ nm/sec}$ に制御して蒸着した。Alq+Qc共蒸着膜は、有機発光層105として機能する。その上に、真空蒸着法により膜厚20nmのAlq膜を形成した。

【0068】

Mo製昇華ボートに原料を約40mg入れ、蒸着速度を $0.15 \pm 0.05 \text{ nm/sec}$ に制御して蒸着した。Alq膜は、有機電子輸送層106として機能する。

【0069】

次に、第2透明電極107を形成した。まず、電子注入層109としてMgとAgの合金膜を形成した。2元同時真空蒸着法を用いて蒸着速度を、それぞれ $0.14 \pm 0.05 \text{ nm/sec}$ 、 $0.01 \pm 0.005 \text{ nm/sec}$ に設定し、膜厚10nmを蒸着した。

【0070】

次に、スパッタリング法により、膜厚50nmのIn-Zn-O膜を形成した。該膜は透明電極110として機能する非晶酸化物膜である。ターゲットには、 $\text{In}/(\text{In}+\text{Zn})=0.83$ のターゲットを用いた。成膜条件は、Ar:O<sub>2</sub>混合ガスを雰囲気とし、真空度0.2Pa、スパッタリング出力を $2 \text{ W/cm}^2$ とした。Mg:Ag/In-ZnO積層膜からなる第2透明電極107は陰極として機能し、その透過率は65%であった。

## 【0071】

次に、熱CVD法により、膜厚35nmのSiNx膜を形成した。同膜は保護膜108として機能する。

## 【0072】

本実施例の有機発光素子は、中心波長525nmで発光する。また、発光領域は有機発光層105にほぼ一様に分布する。そのため、発光領域から屈折率 $n=1$ の空気層に接する保護膜108の表面までの層の全膜厚 $d$ は、以下の様になり、前記式〔1〕を満たす。

〔数5〕

$$115\text{ nm } (=20+10+50+35) \leq d \leq 135\text{ nm}$$

$$(=20+20+10+50+35) < 137.5\text{ nm } (= \lambda/4)$$

比較のため、透明電極110の膜厚を150nmとした有機発光素子を作製した。この膜厚は透明電極として一般的な膜厚である。他の層は本実施例と同じ条件で作製した。発光領域から屈折率 $n=1$ の空気層111に接する保護膜表面までの層の全膜厚 $d$ は以下の様になり、前記式〔1〕を満足しないものであった。

〔数6〕

$$137.5\text{ nm } (= \lambda/4) < 215\text{ nm } \leq d \leq 235\text{ nm}$$

本実施例および比較ための有機発光素子の第1透明電極102と、第2透明電極107間に電圧を5V印加したところ、画素領域112が緑色に発光した。有機発光素子を法線方向から傾けた状態( $\theta$ )で、輝度計を用いて保護膜108側から出射される発光光輝度を測定した。本実施例、比較例の素子共に $\theta=0^\circ$ では、輝度が $100\text{ cd/m}^2$ であった。

## 【0073】

一方、素子を傾けて行くと、比較例では完全拡散面による曲線に従って輝度が減衰するのに対し、本実施例ではほぼ一定の輝度を示した。これは、本実施例の素子では、臨界角以上の出射光に対して全反射が起らず、このため、本実施例の有機発光素子の全光量は、比較例の素子と比べて1.5倍に増大した。

## 【0074】

〔実施例 2〕

本実施例の対向基板を有する有機発光素子について説明する。図2は、本実施例の有機発光素子の模式断面図と画素の平面図である。

#### 【0075】

有機EL基板204の形成方法は以下の通りである。ガラス基板101上に第1透明電極102、有機正孔注入層103、有機正孔輸送層104、有機発光層105、有機電子輸送層106、第2透明電極107を形成した。作製条件は実施例1と同様である。また、有機発光層105、有機電子輸送層106、第2透明電極107の膜厚を、それぞれ20nm、20nm、60nmとした。

#### 【0076】

次に、有機EL基板204を大気に曝すことなく乾燥窒素ガスを循環させ、露点を-90℃以下に保った封止室に移動させた。

#### 【0077】

次に、封止室にガラス基板を導入した。このガラス基板は対向基板203となる。対向基板203のガラス基板のエッジ部分に、シールディスペンサ装置を用いて光硬化樹脂202を描画した。

#### 【0078】

光硬化樹脂202のシール幅は200 $\mu$ mとした。光硬化樹脂202中には、直径10 $\mu$ mのガラスビーズを1重量%混入させた。この対向基板203と有機EL基板204を封止室内で貼り合せ、0.5kg重/cm<sup>2</sup>の荷重で圧着させた。対向基板外側には、画素領域112にUV光が当たらないよう遮光板を置き、対向基板側からUV光を照射させて光硬化樹脂202を硬化させた。

#### 【0079】

UV光はアルカリメタハライドランプを用い照射強度4000mJ/cm<sup>2</sup>、照射時間は4分とした。

#### 【0080】

有機EL基板204と対向基板203のギャップ長は、光硬化樹脂202に含有されたガラスビーズの直径で規定され10 $\mu$ mである。このギャップ内には屈折率n=1の乾燥N<sub>2</sub>ガスが入っている。この層を光取出し層201と定義する。有機発光層105内の発光領域から光取出し層201に接する第2透明電極1

07の表面までの全膜厚dは以下の様になり、発光光中心波長との関係が前記式〔1〕を満たす。

〔数7〕

$$80\text{ nm}(=20+60)\leq d\leq 100\text{ nm}$$

$$(=20+20+60)<137.5\text{ nm}(=\lambda/4)$$

このため、実施例1と同様、発光領域で発光した光は第2透明電極107と光取出し層201の界面において、臨界角以上の出射光に対しても全反射が起らず、光取出し層201に伝播する。

【0081】

光取出し層201に伝播した光は、対向基板203から屈折率1の空気層111へ出射する際、全反射角がなくなり全反射ロスを低減することができる。このため本実施例の有機発光素子の全光量は、通常の膜厚の素子と比べて1.5倍に増大した。

【0082】

〔実施例 3〕

本実施例では、対向基板を有するカラー表示が可能な有機発光表示装置について説明する。図3は、本実施例の有機発光表示装置の模式断面図、図4は画素の平面図である。

【0083】

ガラス基板301上にストライプ状の第1透明電極302, 302'をITO膜で形成する。作製条件は実施例1と同様で、膜厚は140nm、ストライプ幅は100μm、電極間距離は120μmである。

【0084】

その上に、ポジ型感光性保護膜(JSR社製:PC452)を形成した。スピコート法で1000rpm/30秒の塗布条件で成膜し、ホットプレート上に基板を置き、90℃/2分の条件でプリバークした。

【0085】

次に、ホトマスクを用いてghi線混合で露光し、ストライプ状にコンタクトホールを形成した。次いで、JSR社製現像液(PD-523)を用いて、室温

／40秒の条件で現像し、室温／60秒の条件で純水の流水でリンスした。リンス後、波長365nmの光を300mJ/cm<sup>2</sup>の強度でポスト露光し、クリーンオープンで220℃／1時間の条件でポストバークを行った。

## 【0086】

PC452で形成された層間絶縁膜311の膜厚は2μmで、ITOストライプのエッジをそれぞれ20μm覆った。

## 【0087】

次に、第1透明電極302、層間絶縁膜311を形成したガラス基板301を洗浄した。洗浄方法は、実施例1と同様である。

## 【0088】

次に、真空蒸着法で膜厚40nmのα-NPD膜を形成した。Mo製昇華ボートに原料を約50mg入れ、蒸着速度を0.15±0.05nm/secに制御して蒸着した。

## 【0089】

このα-NPD膜は有機正孔輸送層303として機能する。その上に、真空蒸着法にて、膜厚20nmのトリアゾール誘導体（以下、p-EtTAZ膜と略記）を形成した。

## 【0090】

Mo製昇華ボートに原料を約20mg入れ、蒸着速度を0.15±0.05nm/secに制御して蒸着した。このp-EtTAZ膜は有機正孔ブロック層304として機能する。

## 【0091】

その上に、真空蒸着法により膜厚10nmのAlq膜を形成した。Mo製昇華ボートに原料を約10mg入れ、蒸着速度をそれぞれ0.15±0.05nm/secに制御して蒸着した。このAlq膜は有機緑色発光層305として機能する。

## 【0092】

次に、2元同時真空蒸着法で膜厚10nmのAlqと、ナイルレッドの共蒸着膜（以下、Nrと略記）を形成した。

## 【0093】

2個のMo製昇華ボートにAlq, Nrの原料を、それぞれ約10mg, 約5mg入れ、蒸着速度をそれぞれ $0.40 \pm 0.05 \text{ nm/sec}$ ,  $0.01 \pm 0.005 \text{ nm/sec}$ に制御して蒸着した。Alq+Nr共蒸着膜は、有機赤色発光層306として機能する。

## 【0094】

その上に、真空蒸着法により膜厚10nmのAlq膜を形成した。Mo製昇華ボートに原料を約10mg入れ、蒸着速度を $0.15 \pm 0.05 \text{ nm/sec}$ に制御して蒸着した。Alq膜は、有機電子輸送層307として機能する。

## 【0095】

次に、膜厚10nmの電子注入層308、膜厚30nmの透明電極309を形成して、第2透明電極310作製した。作製条件は、膜厚以外は実施例1と同様である。また、第2透明電極310は、シャドウマスクを用いて幅 $200 \mu\text{m}$ 、ピッチ $100 \mu\text{m}$ のストライプ形状とした。

## 【0096】

この有機EL基板312を実施例2と同様に露点 $-90^\circ\text{C}$ 以下の封止室内に入れた。

## 【0097】

次に、ガラス基板318上に感光性ペースト法を用いてリブ317を形成した。感光性有機成分と無機粉末を含有した感光性ペーストをスピンコート法によりガラス基板318に塗布し、エマルジョンマスクを用いてUV露光を行い現像した。続いて焼成し、膜厚 $20 \mu\text{m}$ のリブ317を形成した。

## 【0098】

次に、スパッタリング法により膜厚150nmのAl膜を形成し、次いで、ホトリソグラフィ法にて、補助電極315を形成する。配線幅は $60 \mu\text{m}$ 、配線間距離は $300 \mu\text{m}$ である。

## 【0099】

次に、ガラス基板318上にカラーフィルタ316, 316'を形成する。カラーフィルタは、エッチング法にて形成し、ストライプ状に赤, 緑, 青の順に配

置した。

#### 【0100】

次に、高精度ディスペンサ（武蔵エンジニアリング社製：SMA-3A）を用いて、補助電極315上に金属微粒子を含む光硬化性樹脂314を描画した。光硬化性樹脂のシール幅は $20\mu\text{m}$ である。これらにより、対向基板319が完成される。

#### 【0101】

次に、対向基板319を封止室に入れるが、光硬化性樹脂は封止室に入れる前に、真空下で10分以上脱気する。

#### 【0102】

次に、有機EL基板312と対向基板319を以下の方法で貼り合わせる。CCDカメラを用いて、画素上にカラーフィルタがくるよう調整する。位置微調整後、 $0.5\text{kg重}/\text{cm}^2$ の荷重で圧着し貼り合わせる。対向基板319に遮光マスクを置き、画素領域323、323'にUV光が当たらないようにして、光硬化性樹脂314を硬化させる。硬化条件は実施例2と同様である。

#### 【0103】

本発明では、対向基板319上に形成された高さ $20\mu\text{m}$ のリブ317によって、有機EL基板312と対向基板319の間に屈折率1の乾燥N2が充填された光取出し層313が形成される。

#### 【0104】

有機EL基板312上の各画素323、323'では、白色光321、321'が発光する。 $\alpha$ -NPDとP-EtTAZの界面で青紫色発光が、Alq膜内で緑色発光が、Alq+Nr膜内で赤色発光が起り、それぞれ混色して白色光が発生する。

#### 【0105】

第2透明電極310から発光領域が一番離れているのは、 $\alpha$ -NPDとP-EtTAZの界面で発生する青紫色発光である。青紫色発光の発光領域（ $\lambda = 440\text{nm}$ ）から光取出し層313までの距離dは以下の様になり、前記式〔1〕を満たす。



〔数 8〕

$$d \sim 100 \text{ nm } (= 20 + 10 + 10 + 20 + 10 + 30)$$

$$< 110 \text{ nm } (= \lambda / 4)$$

これによって、各画素で発生した白色光 3 2 1, 3 2 1' は、実施例 1 と同様に、第 2 透明電極 3 1 0 と光取出し層 3 1 3 の界面において臨界角以上の出射光に対しても全反射が起らず、光取出し層 3 1 3 に伝播する。

【0 1 0 6】

光取出し層 3 1 3 に伝播した白色光は、対向基板 3 1 9 上のカラーフィルタ 3 1 6, 3 1 6' により赤、緑、青の単色光 3 2 2, 3 2 2' になるが、屈折率 1 の空気層 3 2 0 へ出射する際、全反射角がなくなり全反射ロスが低減する。このため、本実施例の有機発光素子の全光量は、通常の膜厚の素子と比べて 1.5 倍増大した。

【0 1 0 7】

また、補助電極 3 1 5 を設けることにより、第 2 透明電極 3 1 0 のみの構造と比べて抵抗値が  $1/1000$  以下となり、消費電力が低減された。

【0 1 0 8】

〔実施例 4〕

次に、実施例 1 において必要となる補助電極の配置位置の実施例について説明する。

【0 1 0 9】

本実施例では、図 5 (a) に示すように、1 画素内に配置した R (Red), G (Green), B (Blue) の各色発光層において、サブ画素の一部に、実施例 1 で示した補助電極 3 1 5 を配置したものである。ここで云うサブ画素とは、画素の発光色を変化させるためにあり、例えば、R, G, B が独立に発光し、様々な色を発光させる。

【0 1 1 0】

例えば、G のサブ画素の面積を  $1/2$  にする。その場合、G の輝度を 2 倍にしてトータル光量を等しくする。この場合、高輝度化することにより、電力効率は 10% 程度の減少ですむ。

【 0 1 1 1 】

一方、発光寿命は  $1/2$  に低下するが、G-OLEDは、他のR-OLED、B-OLEDに比べて2倍以上の発光寿命を有しているため、有機発光表示装置の寿命としては問題ない。

【 0 1 1 2 】

これは、現状の材料における発光寿命および発光効率を考慮して配置したものであり、R、G、BのOLEDの発光寿命および発光効率を比較すると、G-OLEDの発光寿命が、他のR-OLED、B-OLEDの発光寿命に比較して約2倍程度優っているため、G-OLEDの一部に補助電極を配置したと云うものである。なお、図5(a)のA-A'断面図を図5(b)に示す。

【 0 1 1 3 】

このように発光寿命および発光効率を考慮することで、実用的な有機発光表示装置を提供できるのである。

【 0 1 1 4 】

〔実施例 5〕

本発明で用いる上部透明電極を、金属極薄膜を用いて構成した実施例について説明する。

【 0 1 1 5 】

図6(a)は、1画素内に配置したR、G、BのOLED上に、例えば白金(Pt)や、金(Au)のような金属を極薄状にして配置し、この上に補助電極を配置した有機発光素子の構造図である。

【 0 1 1 6 】

また、図6(b)は、図6(a)におけるB-B'断面図であるが、図に示すように、例えば、5nm程度の金属極薄膜電極を他の実施例で示した光取り出し側である第2透明電極を用いた場合に比べ、第2電極形成時に下地有機層へ与えるダメージを低減できるという効果を有する。

【 0 1 1 7 】

本発明では、各画素における有機発光素子が白色光を発生させ、対向基板上に形成されたカラーフィルタを伝播することにより、赤、緑、青の単色光として空

気層へ出射した。

#### 【0118】

上記カラー化方式以外にも、各画素において、赤色有機発光素子、緑色有機発光素子、青色有機発光素子を形成して、各画素から赤、緑、青の単色光を空気層に射出する方式に対しても有効である。この場合、対向基板上にカラーフィルタを形成する必要がない。この時、光取出し層313までの距離dは、各画素の発光中心波長に対して前記式〔1〕を満たすことが望ましい。

#### 【0119】

##### 〔実施例 6〕

本発明を用いた有機発光表示装置を携帯電話に適用した例を説明する。有機発光表示装置の画素を形成する有機発光素子の構成は実施例3と同様である。画素数は、 $160 \times 120$ とした。

#### 【0120】

前記第1透明電極ラインをアノードドライバに接続し、第2透明電極ラインをカソードドライバに接続した。フレーム周波数は $100\text{Hz}$ とした。アノードドライバから各ラインにデータ信号列を送り、それに呼応してカソードドライバからアドレス信号を線順次動作させる。ON状態の電流値は1画素当り $6\mu\text{A}$ とした。アドレス信号は、ON状態で $0\text{V}$ 、OFF状態で $7.5\text{V}$ の電圧となるよう設定した。従って、ON状態における陰極－陽極間の電圧は $7.5\text{V}$ 、瞬間輝度は $1000\text{cd}/\text{m}^2$ となった。また、OFF状態の陰極－陽極間の電圧は $0\text{V}$ で、発光しなかった。

#### 【0121】

本実施例では、各RGB画素のサイズが $200 \times 100\mu\text{m}^2$ であるが、これに限定されない。

#### 【0122】

実施例3と同様に、有機発光素子の全光量は、通常の膜厚の素子と比べて1.5倍に増大した。また、補助電極を設けることにより、第2透明電極のみの構造と比べて抵抗値が $1/1000$ 以下となり、消費電力が低減された。

#### 【0123】

【発明の効果】

本発明によれば、有機層内有機発光層から発光した光を屈折率1の空気層に出射する際、全反射によるロスが低減され、発光した光の取出し効率を向上することができる。

【0124】

また、対向基板を有する有機発光素子、並びに、有機発光表示装置に光取出し層を設けることで、内部で発生した発光光を屈折率1の空気層に出射する際、全反射によるロスが低減され、取出し効率を向上することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

実施例1の有機発光素子の模式断面図と画素領域の平面図である。

【図2】

実施例2の有機発光素子の模式断面図と画素領域の平面図である。

【図3】

実施例3の有機発光表示装置の模式断面図である。

【図4】

実施例3の有機発光表示装置の画素領域の平面図である。

【図5】

実施例4の有機発光素子の模式図である。

【図6】

実施例5の有機発光素子の模式図である。

【符号の説明】

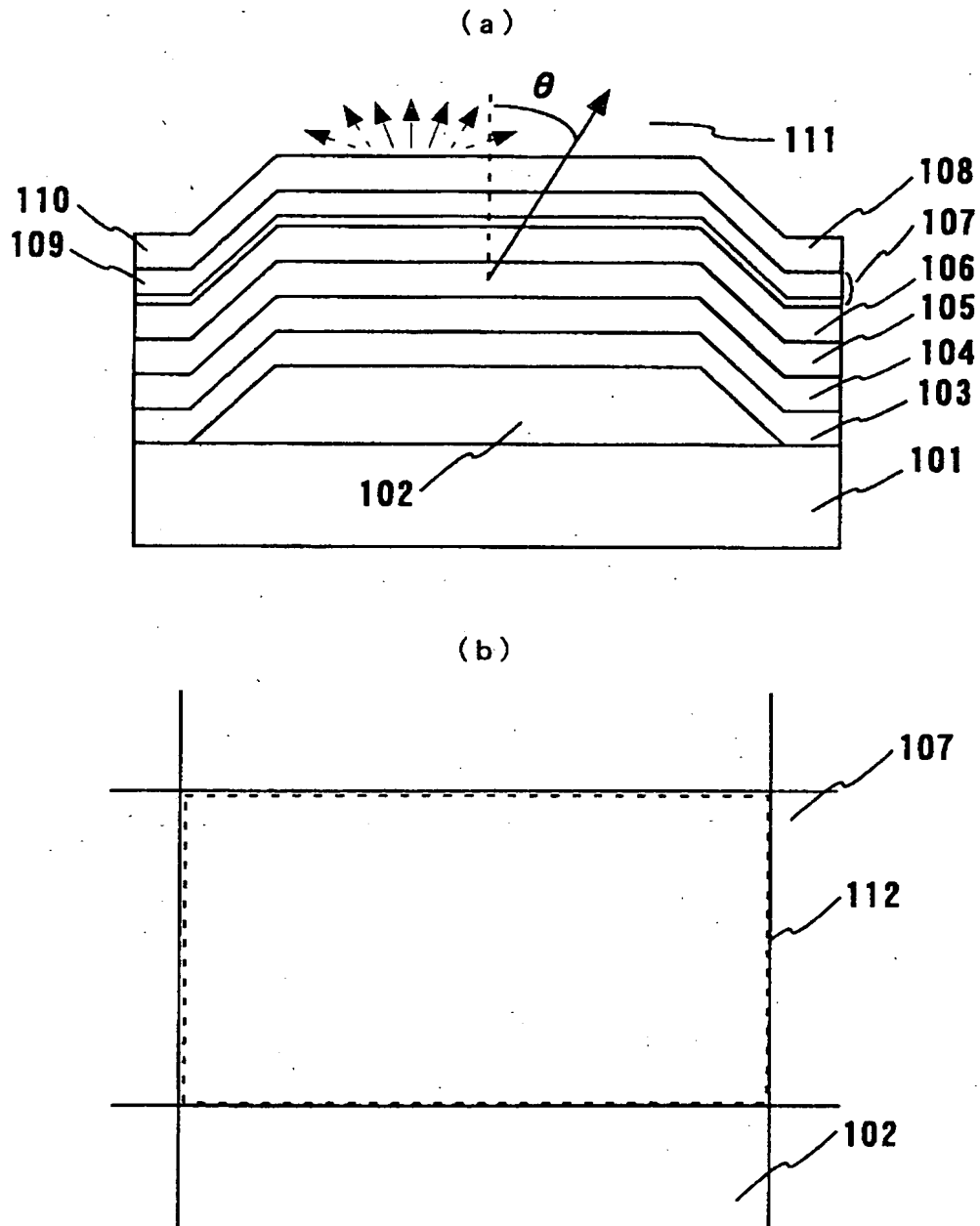
101, 301, 318…ガラス基板、102, 302…第1透明電極、103…有機正孔注入層、104, 303…有機正孔輸送層、105…有機発光層、106, 307…有機電子輸送層、107, 310…第2透明電極、108…保護層、109, 308…電子注入層、110, 309…透明電極、111, 320…屈折率 $n=1$ の空気層、112, 323…画素領域、201, 313…光取出し層、202…光硬化性樹脂、203, 319…対向基板、204, 312…有機EL基板、304…有機正孔ブロック層、305…有機緑色発光層、306

…有機赤色発光層、3 1 1 …層間絶縁膜、3 1 4 …金属微粒子を含む光硬化樹脂  
、3 1 5 …補助電極、3 1 6 …カラーフィルタ、3 1 7 …リブ、3 2 1 …白色光  
、3 2 2 …単色光。

【書類名】 図面

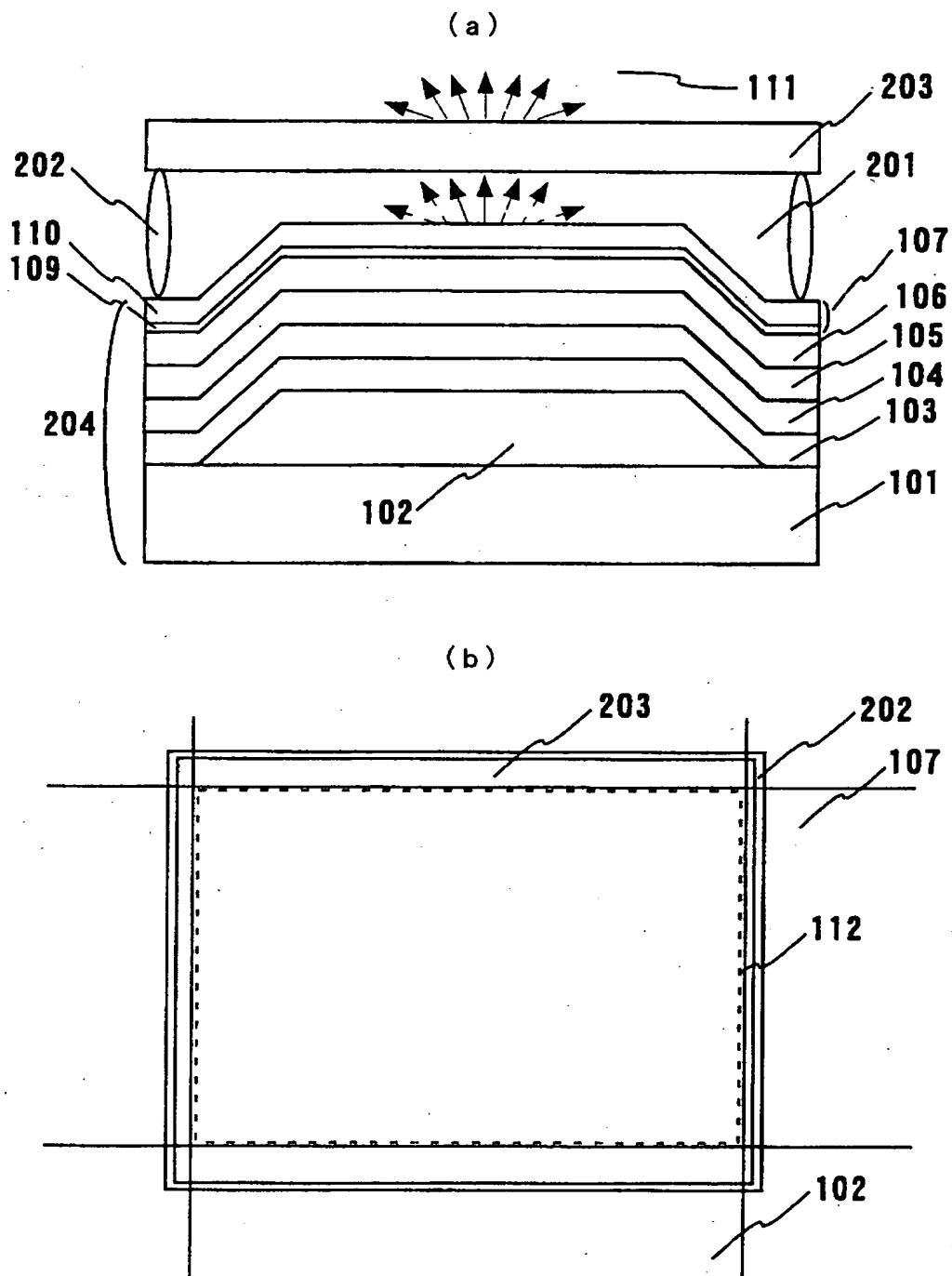
【図 1】

図 1



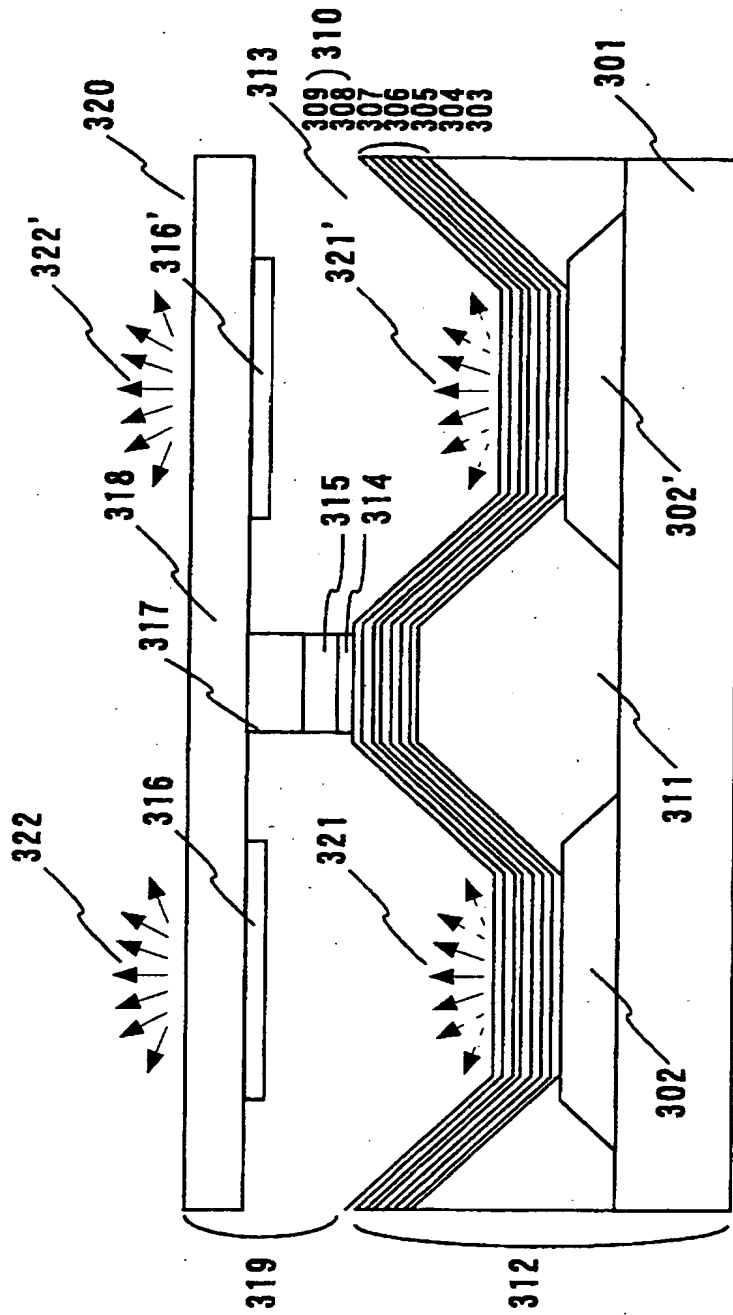
【図 2】

図 2



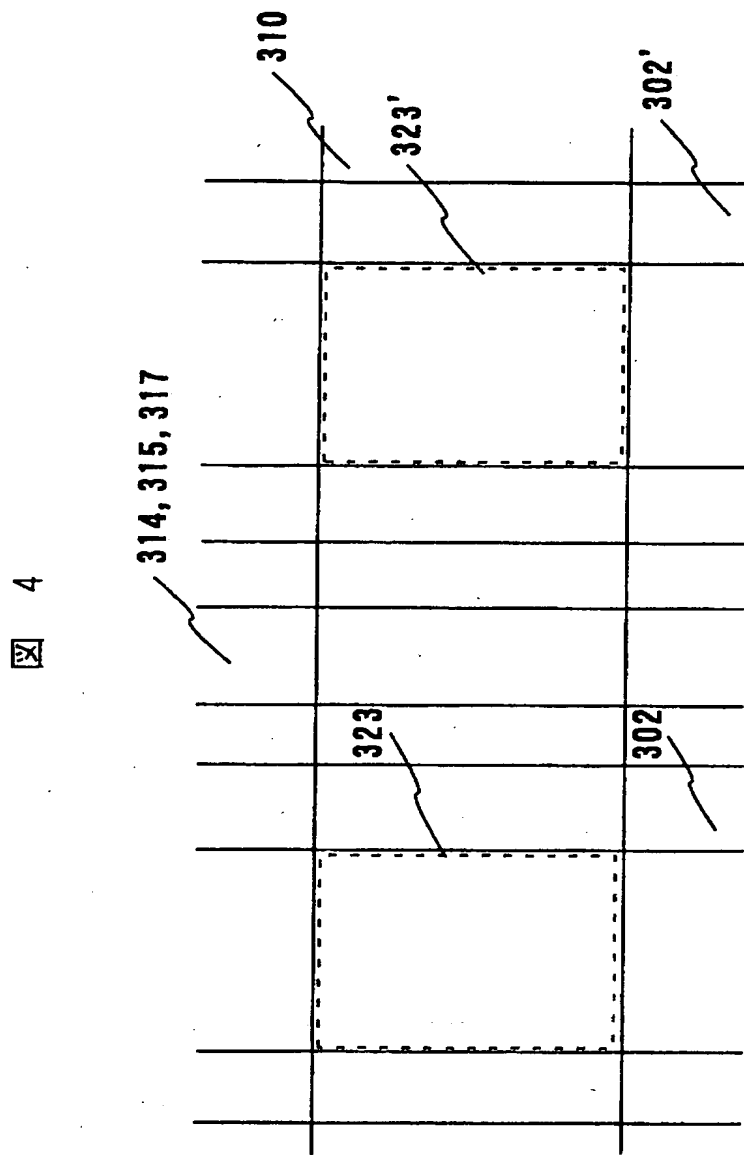
【図 3】

図 3



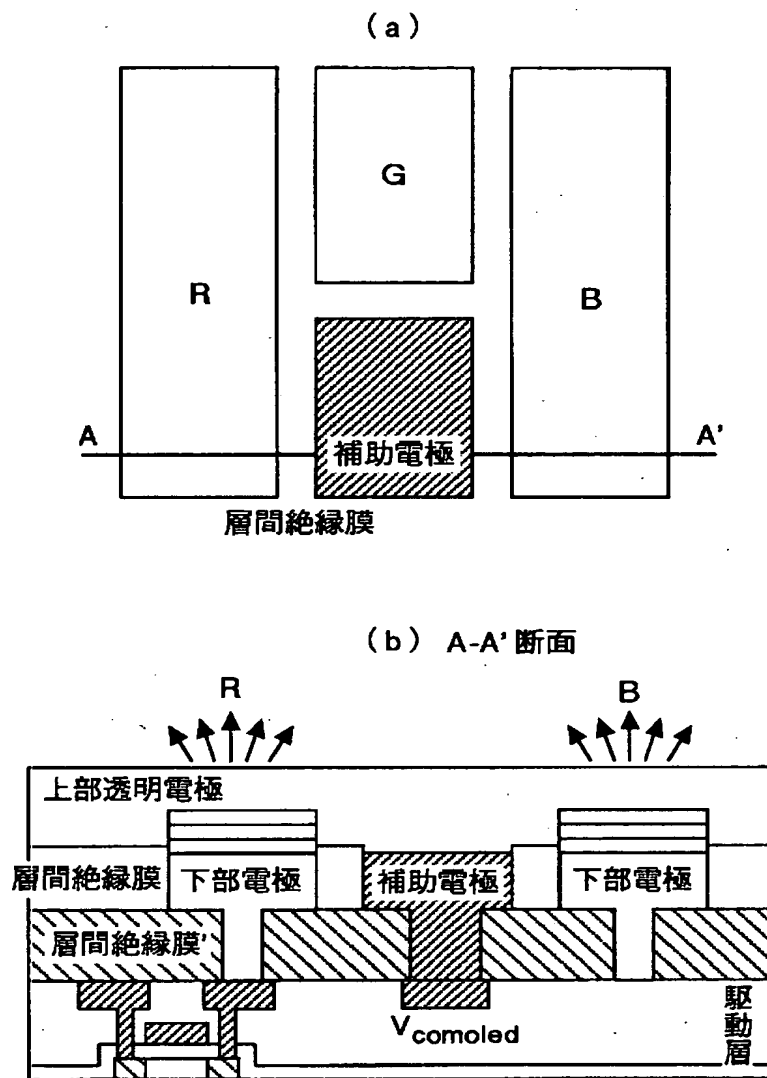


【図 4】



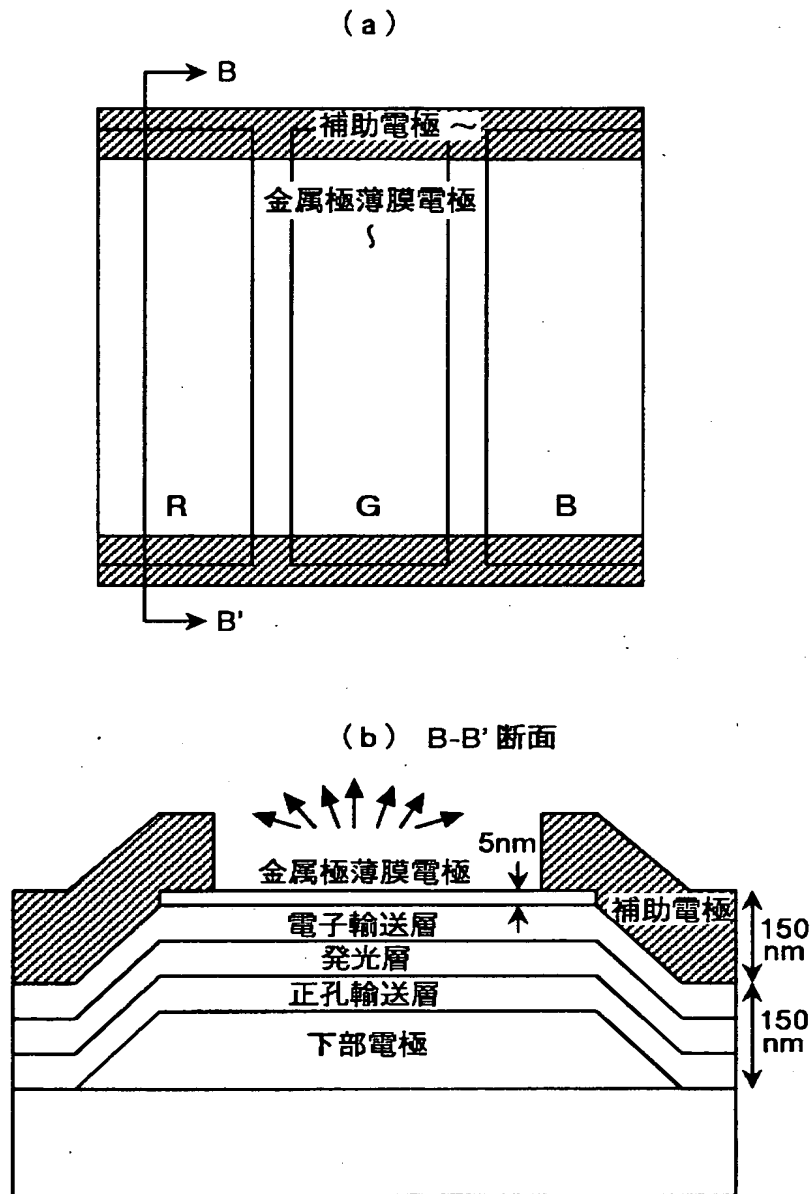
【図 5】

図 5



【図 6】

図 6



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 高効率光取出し構造の有機発光素子の提供。

【解決手段】 基板 1 0 1 上に第 1 透明電極 1 0 2、有機正孔注入層 1 0 3、有機正孔輸送層 1 0 4、有機発光層 1 0 5、有機電子輸送層 1 0 6、電子注入層 1 0 9 と透明電極 1 1 0 を有する第 2 透明電極 1 0 7、保護層 1 0 8 の順に形成し、有機発光層、有機電子輸送層、第 2 透明電極の膜厚、保護膜の全膜厚を発光中心波長の  $1/4$  以下としたことで、発光光の取出し効率を 1.5 倍に向上させた有機発光素子。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000005108]

1. 変更年月日 1990年 8月31日  
[変更理由] 新規登録  
住 所 東京都千代田区神田駿河台4丁目6番地  
氏 名 株式会社日立製作所